

# Modélisation du lien entre la dureté et la période d'empilement dans un revêtement métal/céramique nano-architecturé en multicouche

A. BOURCERET<sup>a</sup>, M. ZAOUÏ<sup>a,b</sup>, D. QUILLIOT<sup>a</sup>, Y. GAILLARD<sup>a</sup>,  
S. GILJEAN<sup>c</sup>, C. ROUSSELOT<sup>a</sup>, M.-J. PAC<sup>c</sup>, F. RICHARD<sup>a</sup>

- a. Univ. Bourgogne Franche-Comté, Institut FEMTO-ST, CNRS/UFC/ENSMM/UTBM,  
25000 Besançon,  
[fabrice.richard@univ-fcomte.fr](mailto:fabrice.richard@univ-fcomte.fr)
- b. IRT M2P, 57000 Metz,  
[mehdi.zaoui@edu.univ-fcomte.fr](mailto:mehdi.zaoui@edu.univ-fcomte.fr)
- c. Univ. Haute Alsace, LPMT EA 4365, 68093 Mulhouse,  
[marie-jose.pac@uha.fr](mailto:marie-jose.pac@uha.fr)

## Résumé :

*Les nitrures métalliques de titane et d'aluminium (TiAl)N sont des revêtements utilisés depuis de nombreuses années pour leurs propriétés remarquables de dureté et de résistance à l'oxydation. Il a été montré que le module d'indentation et la dureté de revêtements  $Ti_{(1-x)}Al_xN$  dépendent de la teneur en aluminium et que les propriétés optimales sont obtenues pour  $x=0,46$  [1,2]. Une possibilité d'amélioration de la dureté de ce type de revêtement est de les architecturer en multicouche métal/céramique.*

*L'objectif est de modéliser le lien entre la dureté d'un revêtement  $[Ti_{0,54}Al_{0,46}/Ti_{0,54}Al_{0,46}N]_n$  et la période  $\Lambda$  de l'empilement des couches afin de comprendre les phénomènes qui génèrent l'augmentation de la dureté aux plus faibles périodes [3].*

*Un modèle numérique de l'essai de nanoindentation Berkovich sur des échantillons nanostratifiés a été élaboré. L'interface métal/céramique est considérée parfaite et sans épaisseur. Les comportements élastoplastiques des couches élémentaires de métal et de céramique ont été identifiés par nanoindentation Berkovich sur des échantillons revêtus d'une seule couche. Ce modèle éléments finis 2D axisymétrique permet d'obtenir la courbe d'indentation (P-h) pour des nanostratifiés en fonction de la période  $\Lambda$  et d'une vingtaine d'autres paramètres (élastoplastiques, géométriques, dimensionnels, ...).*

*Afin de confronter ce modèle à des expériences, des nanostratifiés d'épaisseur d'environ 2 micromètres de différentes périodes  $\Lambda$  (de 10 à 50 nm) ont été architecturés par pulvérisation réactive à signal de commande cyclique (RGPP) en alternant une couche  $Ti_{0,54}Al_{0,46}$  et une couche  $Ti_{0,54}Al_{0,46}N$ . Les échantillons ainsi obtenus ont été testés par nanoindentation Berkovich.*

*Les prévisions du modèle sont en très bon accord avec l'expérience pour la plus grande période (50 nm), mais se dégradent lorsque la période diminue. Le modèle ne permet pas de reproduire l'augmentation de la dureté aux plus faibles périodes. Une analyse de sensibilité du modèle de la courbe d'indentation a été menée. Elle montre l'importance de la fraction volumique de céramique dans le système bicouche métal/céramique et de l'écroûissage de la couche métallique. Une analyse*

spectrographique par spectroscopie de perte d'énergie des électrons au microscope électronique à transmission pour la période  $\Lambda=10$  nm a mis en évidence une proportion d'azote dans la couche métallique sur quelques nanomètres, signe d'une intermixture des couches. Ces résultats montrent que des phénomènes élastoplastiques à l'interface métal/céramique jouent un rôle important aux faibles périodes et remettent en cause l'hypothèse initiale d'interface parfaite et sans épaisseur.

Il est montré que l'ajout dans le modèle d'une couche de transition ayant un comportement élastoplastique moyen métal/céramique permet de reproduire les courbes de nanoindentation expérimentales et que l'épaisseur de cette couche est en très bon accord avec les observations spectroscopiques.

## Abstract:

Titanium and aluminium (TiAl)N metal nitrides are coatings used for many years for their remarkable properties of hardness and resistance to oxidation. It has been shown that the indentation module and hardness of  $Ti(1-x)Al_xN$  coatings depend on the aluminum content and that the optimal properties are obtained for  $x=0.46$  [1,2]. One possibility of improving the hardness of this type of coating is to architect them as multilayer metal/ceramic composites.

The objective is to model the relationship between the hardness of a coating  $[Ti_{0.54}Al_{0.46} / Ti_{0.54}Al_{0.46}N]_n$  and the period  $\Lambda$  of the stacking of the layers in order to understand the increase of the hardness at the lowest periods [3].

A numerical model of the Berkovich nanoindentation test on nanostratified samples was developed. The metal/ceramic interface is considered perfect and without thickness. The elastoplastic behaviors of the elementary layers of metal and ceramic were identified by Berkovich nanoindentation on single-layer samples. This 2D axisymmetric finite element model enables the indentation curve ( $P-h$ ) to be obtained for nanostratified elements according to the period  $\Lambda$  and about twenty other parameters (elastoplastic, geometric, dimensional, etc.).

In order to compare this model with experiments, nanostratified of approximately 2-micrometer thickness with different periods  $\Lambda$  (from 10 to 50 nm) were architected by reactive gas pulsing process (RGPP) alternating a layer of  $Ti_{0.54}Al_{0.46}$  and one of  $Ti_{0.54}Al_{0.46}N$ . The resulting samples were tested by Berkovich nanoindentation.

The model forecasts are very consistent with the experience for the largest period (50 nm), but deteriorates when the period decreases. The model does not reproduce the increase in hardness at the lowest periods. A sensitivity analysis of the indentation curve model was conducted, showing the importance of ceramic volume fraction in the two-layer metal/ceramic system and the hardening of the metal layer.

A spectrographic analysis by electron energy loss spectroscopy with a transmission electron microscope for the film with a period  $\Lambda=10$  nm showed the presence of nitrogen in the metal layer over a few nanometers, sign of intermixture of the layers. These results show that elastoplastic phenomena at the metal/ceramic interface play an important role at low periods and question the initial hypothesis of perfect and thickness-free interface.

It is shown that the addition in the model of a transition layer with an elastoplastic behaviour which is some empiric average of that of the metal and the ceramic allows to reproduce the experimental Nanoindentation curves and that the thickness of this layer is very good agreement with spectroscopic observations.

**Mots clefs : nanoindentation, éléments finis, multicouche, dureté**

# 1 Introduction

Les nitrures métalliques de titane et d'aluminium (Ti,Al)N sont des revêtements utilisés depuis une trentaine d'années pour leurs propriétés remarquables de dureté et de résistance à l'oxydation [4]. Il a été montré que la dureté de revêtements  $Ti_{(1-x)}Al_xN$  dépend de la teneur en aluminium et que les propriétés optimales sont obtenues pour  $x=0,46$  [1,2]. Une possibilité d'amélioration de la dureté de ce type de revêtement est de les architecturer en multicouche métal/céramique. Dans cette étude, le motif élémentaire de période nanométrique  $\Lambda$  (50, 16, 10 nm) est constitué d'une couche d'alliage métallique ( $Ti_{0,54}Al_{0,46}$ ) et d'une couche céramique ( $Ti_{0,54}Al_{0,46}N$ ). L'objectif est de modéliser le lien entre la dureté Berkovich et la période  $\Lambda$  de l'empilement  $[Ti_{0,54}Al_{0,46}/Ti_{0,54}Al_{0,46}N]_n$  afin de comprendre les phénomènes élastoplastiques qui génèrent l'augmentation de la dureté aux plus faibles périodes observée expérimentalement [2,3].

Dans un premier temps, le procédé de fabrication des revêtements est détaillé, ainsi que la méthode d'identification par nanoindentation du comportement élastoplastique des monocouches  $Ti_{0,54}Al_{0,46}$  et  $Ti_{0,54}Al_{0,46}N$  (les proportions ne seront plus indiquées par la suite pour alléger les notations).

Dans un second temps, un modèle EF de l'essai de nanoindentation Berkovich sur le revêtement multicouche est élaboré. L'interface métal/céramique est considérée parfaite et sans épaisseur. Les comportements élastoplastiques des couches élémentaires de métal et de céramique préalablement identifiés sont introduits dans le modèle. Ce modèle permet d'obtenir la courbe d'indentation ( $P-h$ ) en fonction de la période  $\Lambda$  et d'une vingtaine d'autres paramètres (matériaux, géométriques, dimensionnels). Les courbes ( $P-h$ ) simulées sont confrontées aux courbes expérimentales. Les prévisions du modèle sont en bon accord avec l'expérience pour la plus grande période (50 nm), mais se dégrade lorsque la période diminue. Le modèle ne permet pas de reproduire l'augmentation de la dureté aux plus faibles périodes. Il est finalement montré que l'ajout dans le modèle d'une couche de transition élastoplastique dont l'épaisseur varie en fonction de la période du multicouche permet de reproduire les courbes ( $P-h$ ) expérimentales.

## 2 Echantillons et moyens de caractérisation

### 2.1 Elaboration des revêtements

Tous les dépôts sont effectués sur des substrats en silicium. Le revêtement monocouche de TiAl est déposé par pulvérisation cathodique magnétron (Figure 1). Ce procédé consiste à bombarder avec des ions argon une cible (ici un alliage de titane et d'aluminium) fixé sur la cathode. Les ions argon soumis à un champ électrique vont acquérir de l'énergie et venir frapper la surface du matériau cible pour en arracher des atomes de Ti et d'Al. Ces atomes sont transportés jusqu'au substrat et se déposent en une couche métallique.

Le revêtement monocouche de TiAlN est déposé suivant le même principe, mais en introduisant un second gaz appelé gaz réactif (ici l'azote) pour faire réagir le métal avec l'azote et ainsi déposer la couche céramique.

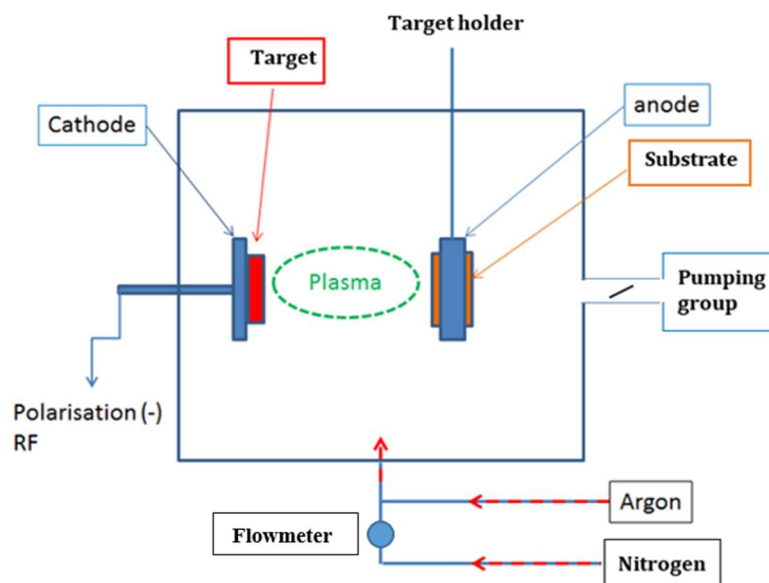


Figure 1 : Procédé de pulvérisation cathodique [5] et RGPP

Les mesures de l'épaisseur des films déposés sont effectuées à l'aide d'un stylet profileur de surface DEKTAC 3030 : 3  $\mu\text{m}$  pour le TiAlN et 2,95  $\mu\text{m}$  pour le TiAl.

La pulvérisation cathodique magnétron est également utilisée pour nano-architecturer les revêtements en multicouche mais l'azote est introduit de manière pulsée (RGPP : Reactive Gas Pulsing Process [6]) par l'intermédiaire d'un débitmètre massique selon des créneaux carrés (Figure 2). Durant le temps de fermeture du débitmètre, l'argon permet de déposer une couche TiAl et durant le temps d'ouverture du débitmètre, l'introduction d'azote permet de déposer la couche de nitrure TiAlN. L'obtention des différentes périodes d'empilement  $\Lambda$  se fait en modifiant la fréquence d'ouverture-fermeture du débitmètre. Lorsque le débit d'azote est nul, on dépose du TiAl, lorsque le débit est au maximum, on dépose du TiAlN stœchiométrique.

La première couche déposée sur le substrat Si est une couche métallique et la dernière couche (celle de surface) est une couche céramique. L'épaisseur et le nombre de couches des revêtements ainsi nano-architecturés dépendent de la période d'empilement mais l'épaisseur du revêtement est quasi constant, soit environ 2  $\mu\text{m}$  (Tableau 1) [2].

Périodes $\Lambda$ (nm)	Épaisseur du revêtement (nm)	Nombre de période (-)
50	2000	40
16	1970	123
10	1790	179

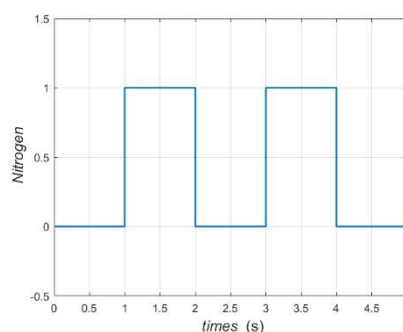


Tableau 1 : Caractéristiques géométriques des revêtements multicouches élaborés par RGPP

Figure 2 : Fonction créneau représentant l'ouverture-fermeture du débitmètre

## 2.2 Nanoindentation

L'essai de nanoindentation (Figure 3) consiste en la mesure simultanée de l'effort d'appui  $P$  sur la pointe de l'indenteur et de sa pénétration  $h$  dans l'échantillon. La représentation  $P-h$  lors d'une charge-décharge constitue la courbe d'indentation (Figure 4). Le pilotage de l'essai peut s'effectuer en déplacement ou en force. Le nanoindenteur utilisé pour les essais sur le revêtement monocouche TiAlN est un II<sup>s</sup> (Nano-instrument) équipé d'une pointe Berkovich de rayon de pointe 550 nm [1]. Après la défaillance de ce dispositif, les essais sur les revêtements multicouche et monocouche TiAl ont été réalisés à l'aide d'un nanoindenteur Anton Paar UNHT (Ultra Nano-Indentation Hardness Tester) équipé d'une pointe Berkovich de rayon de pointe 100 nm [2].

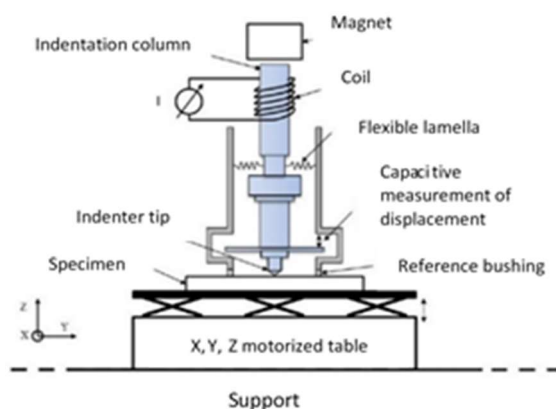


Figure 3 : Schéma de principe d'un nanoindenteur

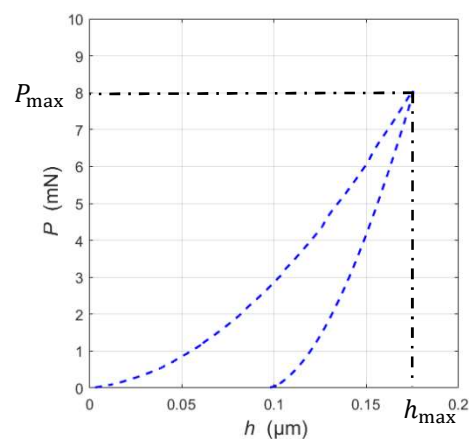


Figure 4 : Courbe d'indentation  $P-h$

L'analyse de la courbe  $P-h$  (force-enfoncement) permet une estimation des paramètres élastoplastiques. La méthode CSM (*Continuous Stiffness Measurement*) est utilisée pour enrichir la mesure. Elle consiste à superposer pendant la charge un signal harmonique (45 Hz) de très faible amplitude (1 nm). Cette méthode donne accès à l'évolution du module et de la dureté d'indentation en fonction de l'enfoncement de la pointe [7]–[10]. Le module  $M$  et la dureté d'indentation  $H$  des revêtements sont ensuite estimés en  $h = 0$  respectivement à l'aide des modèles de King et Bhattacharya et Nix[11]. Les modules et duretés d'indentation obtenues par Pac et al [2] sont données Figure 5. Les évolutions suivent une loi de type Hall and Petch, c.a.d. que le module et la dureté augmentent proportionnellement à  $1/\sqrt{\Lambda}$ . Le  $\text{Ti}_{0,54}\text{Al}_{0,46}$  ( $M = 212 \pm 11$  GPa ;  $H = 13.0 \pm 1.3$  GPa) a un plus faible module d'indentation et une plus faible dureté que le  $\text{Ti}_{0,54}\text{Al}_{0,46}\text{N}$  ( $M = 512 \pm 26$  GPa,  $33.0 \pm 2.7$  GPa).

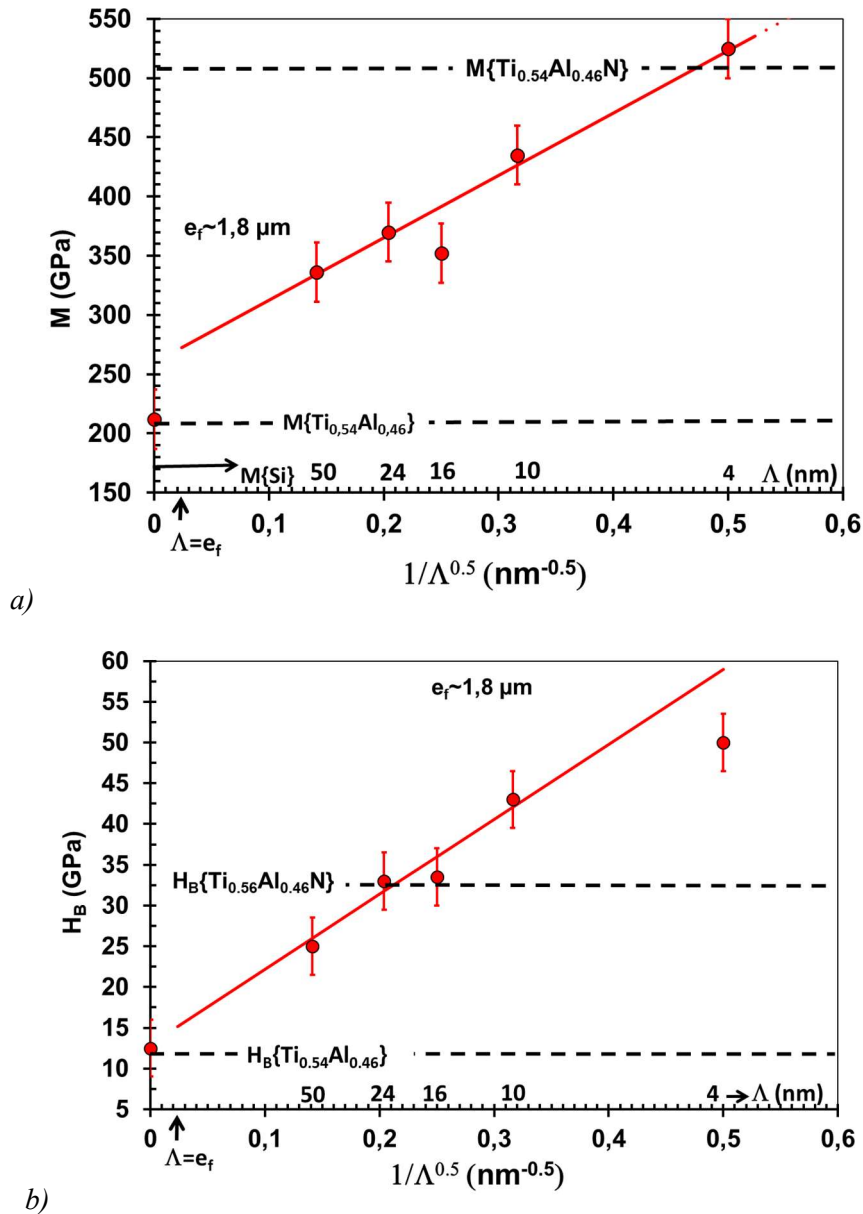


Figure 5 : (a) Module d'indentation et (b) dureté d'indentation en fonction de  $1/\sqrt{\Lambda}$  [2]

En postulant les coefficients de Poisson connus, les modules d'indentation donnent accès aux modules d'Young des deux monocouches :

Couche céramique TiAlN [1,2]:

- Module de Young :  $E_A = 417$  GPa
- Coefficient de Poisson :  $\nu_A = 0.21$

Couche métallique TiAl [2] :

- Module de Young :  $E_B = 199$  GPa
- Coefficient de Poisson :  $\nu_B = 0.25$

### 3 Identification du comportement plastique des monocouches

#### 3.1 Loi de comportement

Une loi élastoplastique à écrouissage linéaire isotrope est choisie pour modéliser le comportement du matériau [12]. La déformation totale  $\boldsymbol{\varepsilon}$  est supposée être la somme d'une déformation élastique  $\boldsymbol{\varepsilon}^e$  et d'une déformation plastique  $\boldsymbol{\varepsilon}^p$  ( $\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^e + \boldsymbol{\varepsilon}^p$ ). L'énergie libre massique de Helmholtz  $\psi$  s'exprime :

$$\psi = \frac{1}{2\rho} (\boldsymbol{\varepsilon}^e : \mathbf{C}_{E,\nu} : \boldsymbol{\varepsilon}^e + H_p r^2) \quad (1)$$

$r$  est la variable interne représentant le phénomène d'écrouissage isotrope,  $\rho$  est la masse volumique,  $\mathbf{C}(E, \nu)$  est le tenseur des rigidités élastiques.  $E, \nu$  et  $H_p$  sont respectivement le module d'Young, le coefficient de Poisson et le module d'écrouissage. Les lois d'états dérivent de ce potentiel :

$$\boldsymbol{\sigma} = \rho \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^e} \quad \text{et} \quad R = \rho \frac{\partial \psi}{\partial r} \quad (2)$$

où  $\boldsymbol{\sigma}$  est le tenseur des contraintes de Cauchy et  $R$  est la contrainte d'écrouissage. La fonction de charge (hypothèse von Mises) est donnée par l'expression suivante :

$$f = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{s} : \mathbf{s}} - R - \sigma_Y \quad (3)$$

où  $\sigma_Y$  est la limite élastique et  $\mathbf{s}$  le tenseur déviateur des contraintes. Les dérivées de  $f$  fournissent les évolutions des variables internes :

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^p = \dot{\lambda} \frac{\partial f}{\partial \boldsymbol{\sigma}} \quad \text{et} \quad \dot{r} = -\dot{\lambda} \frac{\partial f}{\partial R} = \dot{\lambda} \quad (4)$$

avec  $\dot{\lambda}$  le multiplicateur plastique déterminé par la condition de cohérence  $\dot{f} = 0$  si  $f = 0$ .

Pour chaque monocouche, le comportement est piloté par deux paramètres élastiques ( $E, \nu$ ) connus et 2 paramètres plastiques ( $\sigma_Y, H_p$ ) inconnus :  $\boldsymbol{\theta} = (\theta_1, \theta_2) = (\sigma_Y, H_p)$ . Afin d'identifier les paramètres plastiques des deux monocouches ( $\sigma_{Y,A}, H_{p,A}$  et  $\sigma_{Y,B}, H_{p,B}$ ), c.à.d. la limite élastique et le module d'écrouissage des deux monocouches, une méthode de recalage du modèle EF de l'essai de nanoindentation est mise en œuvre.

#### 3.2 Estimation des paramètres plastiques

L'estimation des paramètres plastiques des deux monocouches est effectuée par recalage d'un modèle de l'essai de nanoindentation sur les courbes d'indentation expérimentales. Le modèle est un modèle éléments finis (EF) (Figure 6) élaboré à l'aide du logiciel ANSYS. Ce modèle 2D-axisymétrique permet de simuler l'indentation conique élastoplastique en grandes déformations. La pointe conique est supposée déformable élastiquement et de demi-angle au sommet égal à  $70,3^\circ$ . Cette géométrie présente une fonction d'aire équivalente à celle de la pointe Berkovich. L'émoussement de la pointe est modélisé par un arc de cercle (rayon  $R$  de 100 nm pour l'essai sur le TiAl et de 550 nm pour celui sur le TiAlN). Le coefficient de frottement ( $\mu$ ) entre la pointe et l'échantillon est pris égal à 0,1. Afin de minimiser l'effet des conditions aux limites, les épaisseurs de l'échantillon et de la pointe sont 60 fois plus grand que l'enfoncement maximal  $h_{max}$ . La zone directement située sous la pointe est finement maillée sur une longueur 2 fois plus grande que l'épaisseur du revêtement pour modéliser au mieux le contact (algorithme du multiplicateur de Lagrange pour le contact normal et de la pénalité pour le contact tangent). Dans cette zone, les éléments quadrangles linéaires à 4 nœuds (PLANE 182) sont initialement

carrés de longueur d'arrête égale au dixième de la profondeur maximale d'indentation. Pour la pointe, des éléments triangulaires quadratiques à 6 nœuds (PLANE 183) sont utilisés. Ils ont au niveau du contact une taille équivalente à ceux de l'échantillon.

Le maillage est progressivement plus grossier en s'éloignant de la zone de contact, permettant de diminuer le nombre d'éléments et donc de réduire les temps de calculs. Le modèle comporte environ 45000 éléments. Les nœuds appartenant à la surface inférieure de l'échantillon modélisée sont encastrés et un déplacement est imposé sur la surface supérieure de l'indenteur.

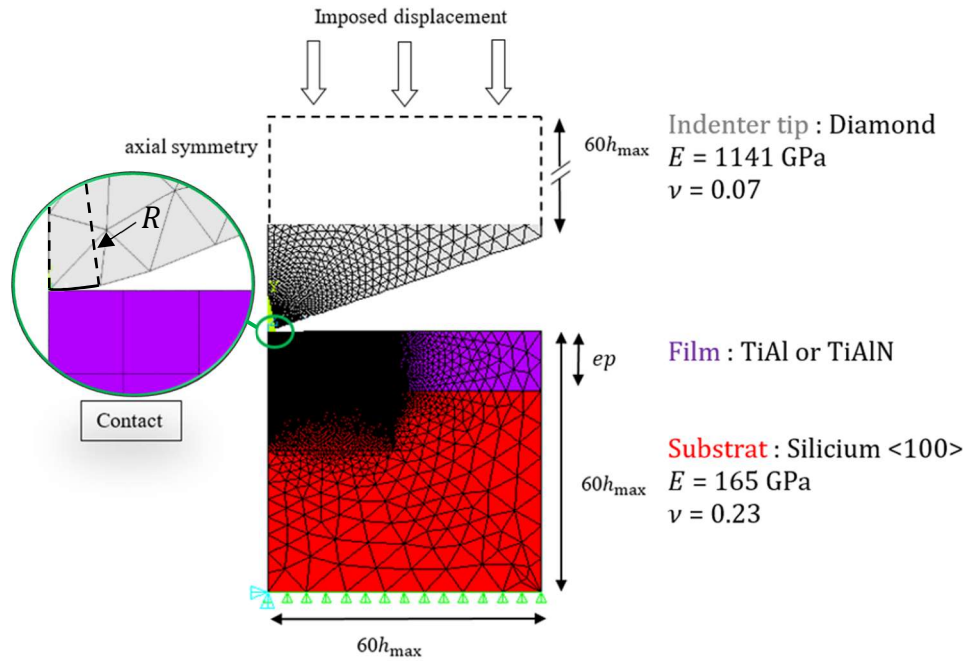


Figure 6 : Schéma du maillage et conditions aux limites du modèle 2D-axisymétrique

Le recalage du modèle de la courbe  $P-h$  sur les données expérimentales permet d'estimer un ou des vecteurs-paramètres  $\hat{\theta}$  qui minimisent l'écart entre les observations  $P(t; \theta)$  issues du modèle de l'essai et les données  $P^{exp}(t)$  issues de l'expérimental lors de la charge. Le problème inverse peut se reformuler en un problème de minimisation d'une fonction coût  $\omega$  représentant une distance entre le modèle et l'expérience :

$$\hat{\theta} = \underset{\theta}{\operatorname{argmin}} \omega (P(t; \theta), P^{exp}(t)) \quad (5)$$

La fonction coût  $\omega$  est minimisée par une technique d'optimisation locale basée sur l'algorithme de Levenberg-Marquard [8,9] à l'aide du logiciel MIC2M [15]. Elle peut s'exprimer en supposant une incertitude absolue constante sur chaque mesure de force :

$$\omega(\theta) = \frac{1}{2T} \sum_{k=1}^T \left( \frac{P_k(\theta) - P_k^{exp}}{P_{max}^{exp}} \right)^2 \quad (6)$$

$T$  est le nombre d'observations temporelles de la force  $P_k(\theta) = P(t_k; \theta)$  échantillonnée à fréquence constante et  $P_{max}^{exp}$  la valeur maximale de la force d'indentation expérimentale.

Le Tableau 2 récapitule les valeurs des paramètres élastoplastiques des monocouches obtenues. La Figure 7 illustre graphiquement les deux comportements lors d'une réponse en traction simple. La Figure 8 illustre la bonne corrélation modèle-expérience.



Matériaux	Module d'Young (GPa)	Coefficient de Poisson	Limite élastique (GPa)	Module d'écroutissage (GPa)
TiAlN	$E_A = 417$	$\nu_A = 0,21$	$\sigma_{y,A} = 5,70$	$H_{p,A} = 405,0$
TiAl	$E_B = 199$	$\nu_B = 0,25$	$\sigma_{y,B} = 0,88$	$H_{p,B} = 56,6$

Tableau 2 : Récapitulatif des valeurs des paramètres élastoplastiques des monocouches

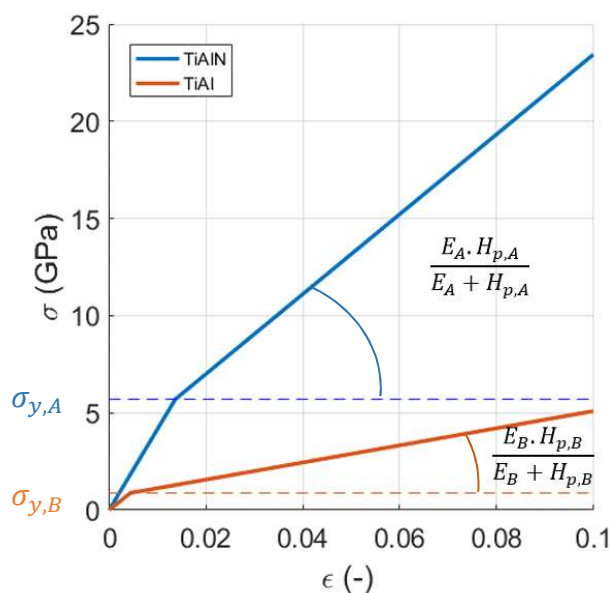
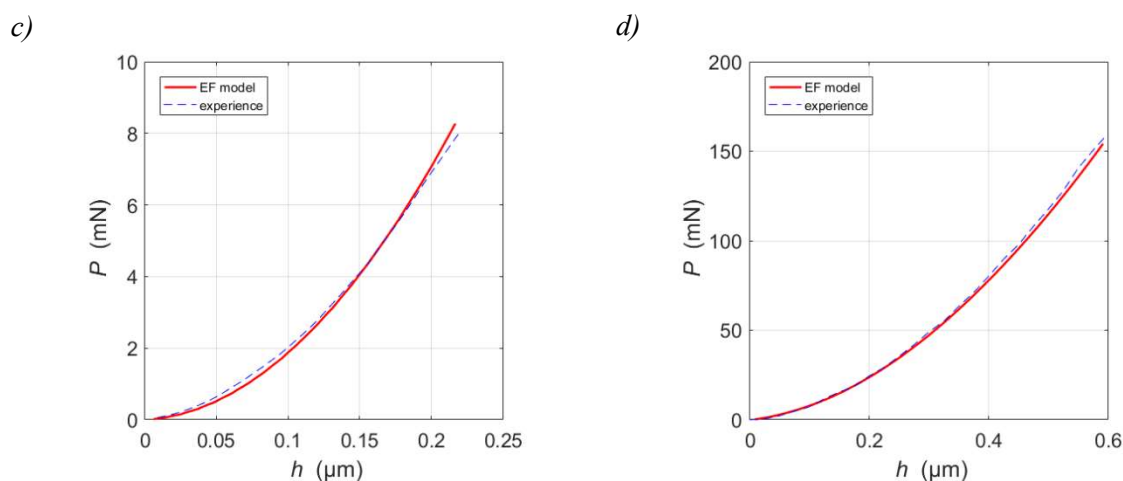


Figure 7 : Représentation du comportement en traction des deux monocouches (A : TiAlN, B : TiAl)

Figure 8 : Comparaison modèle-expérience lors de l'enfoncement de la pointe  
c) Revêtement TiAl et d) Revêtement TiAlN

Les comportements élastoplastiques des monocouches ainsi identifiés seront introduits dans un modèle de multicouche pour tenter de prévoir la réponse en indentation en fonction de la période  $\Lambda$ .

## 4 Indentation des revêtements multicouches

### 4.1 Empilement avec des interfaces parfaites et sans épaisseur

Les comportements élastoplastiques des couches élémentaires de métal et de céramique ont été identifiés par nanoindentation Berkovich sur des échantillons revêtus d'une seule couche sur substrat Si.

Le modèle numérique utilisé pour le revêtement multicouche est basé sur le modèle EF du revêtement monocouche (Figure 6). Le revêtement est modélisé comme un assemblage de monocouches empilées alternativement d'une couche TiAl et d'une couche TiAlN (Figure 9). L'interface métal/céramique est considérée parfaite et sans épaisseur.

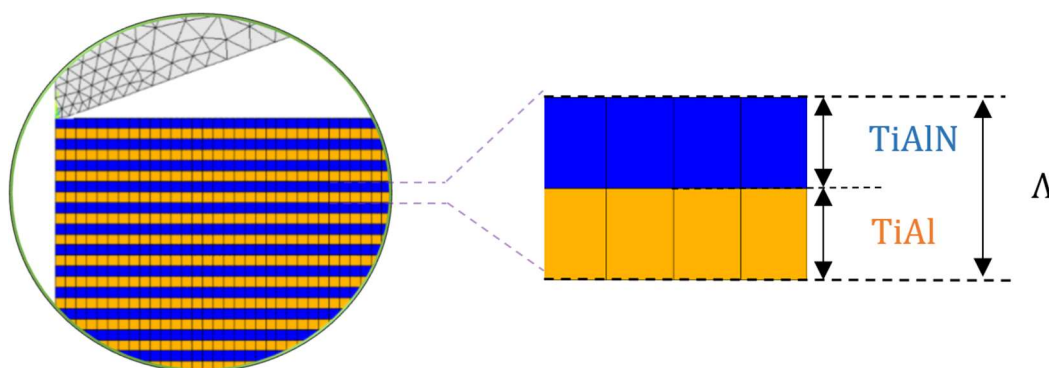


Figure 9 : Zoom sur le revêtement nano-architecturé en multicouche de période  $\Lambda$

Le modèle est paramétré pour chaque période d'empilements  $\Lambda$ . Une étude de convergence a été réalisée avec 1, 2 et 3 éléments dans l'épaisseur des couches ainsi qu'un maillage de la pointe deux fois plus fin. La variation relative de la force étant inférieure à 0.5%, un seul élément (de taille  $\Lambda/2$ ) dans l'épaisseur des couches a été finalement utilisée (Figure 9), afin de minimiser le temps de calcul (Tableau 3).

	$\Lambda = 50 \text{ nm}$	$\Lambda = 16 \text{ nm}$	$\Lambda = 10 \text{ nm}$
Nombre éléments	15 223	126 359	284 992
Temps calcul	0,8 h	12 h	28 h

Tableau 3 : Nombre d'éléments dans l'épaisseur des revêtements multicouches et temps de calcul pour les trois périodes d'empilement

La Figure 10 illustre les prévisions du modèle pour les trois périodes et la confrontation avec les données expérimentales.

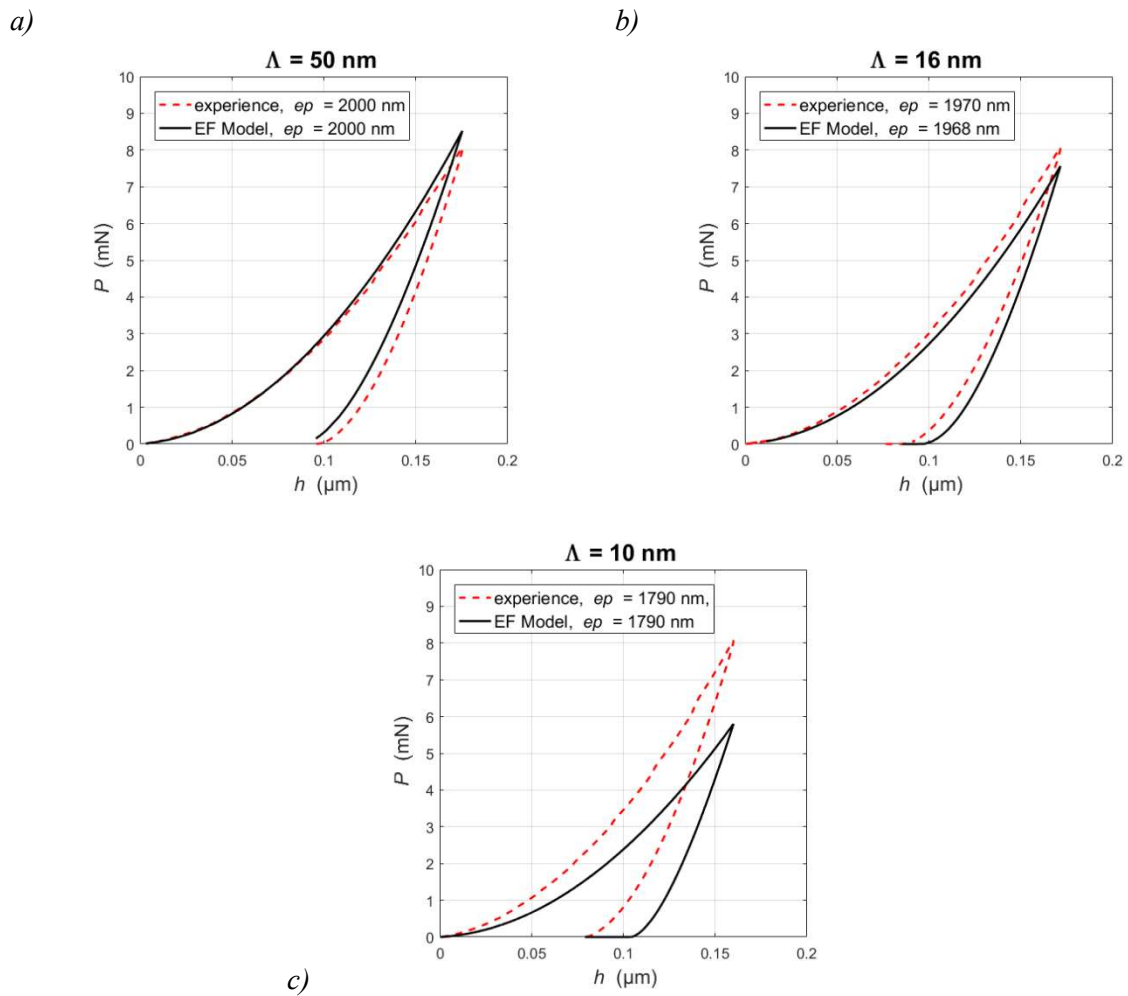


Figure 10 : Comparaison modèle-expérience pour les différentes périodes  $\Lambda$ .  
Modèle avec interface parfaite et sans épaisseur

Pour la plus grande période  $\Lambda = 50 \text{ nm}$ , le modèle est en bon accord avec l'expérience. En revanche le décalage modèle-expérience augmente lorsque la période diminue et devient important pour la plus faible période  $\Lambda = 10 \text{ nm}$ . Un phénomène qui génère une augmentation de la dureté lorsque la période diminue n'est donc pas pris en compte dans le modèle. Si l'effet de ce phénomène est négligeable pour  $\Lambda = 50 \text{ nm}$ , il ne l'est plus pour  $\Lambda = 10 \text{ nm}$ .

## 4.2 Ajout d'une couche de transition

Entre chaque couche TiAl et TiAlN, une couche de transition d'épaisseur  $ep_{Tr}$  inconnue est ajoutée au modèle multicouche (Figure 11). Le comportement du matériau de la couche de transition est supposé être un comportement moyen des deux monocouches. Chaque paramètre élastoplastique de la couche de transition ( $E_{Tr}, \nu_{Tr}, \sigma_{y,Tr}, H_{p,Tr}$ ) est une moyenne des paramètres des deux monocouches A et B (loi des mélanges 50/50).

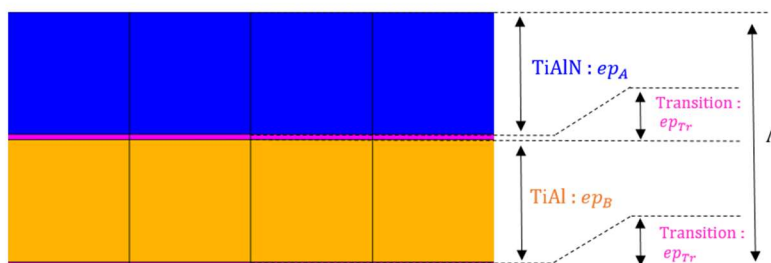


Figure 11 : Modèle EF avec couche de transition

Le Tableau 4 récapitule le nombre d'éléments finis et le temps de calcul d'une simulation.

	$\Lambda = 50 \text{ nm}$	$\Lambda = 16 \text{ nm}$	$\Lambda = 10 \text{ nm}$
Nombre éléments	34 258	307 806	906 863
Temps calcul	1,2 h	16 h	30 h

Tableau 4 : Nombre d'éléments dans l'épaisseur des revêtements multicouches et temps de calcul pour les trois périodes d'empilement avec couche de transition

Pour chaque période  $\Lambda$ , l'épaisseur  $ep_{Tr}$  de la couche de transition est estimée par recalage du modèle EF. Les résultats sont récapitulés dans le Tableau 5. On peut noter l'augmentation très importante du rapport  $ep_{Tr}/\Lambda$ . Pour la période 50 nm, le recalage conduit à annuler l'épaisseur  $ep_{Tr}$ , donc à l'absence de couche de transition comme dans le modèle précédent.

Pour la période 10 nm, l'épaisseur de la couche de transition est du même ordre de grandeur que l'épaisseur des couches A et B.

	$\Lambda = 50 \text{ nm}$	$\Lambda = 16 \text{ nm}$	$\Lambda = 10 \text{ nm}$
Épaisseur de Transition $ep_{Tr}$ (nm)	→ 0	1,2	2,12
Fraction volumique $ep_{Tr}/\Lambda$ (%)	→ 0	7,5	21

Tableau 5 : Épaisseurs de transitions des revêtements multicouches

La Figure 12 illustre la bonne corrélation modèle-expérience obtenue pour les trois périodes.

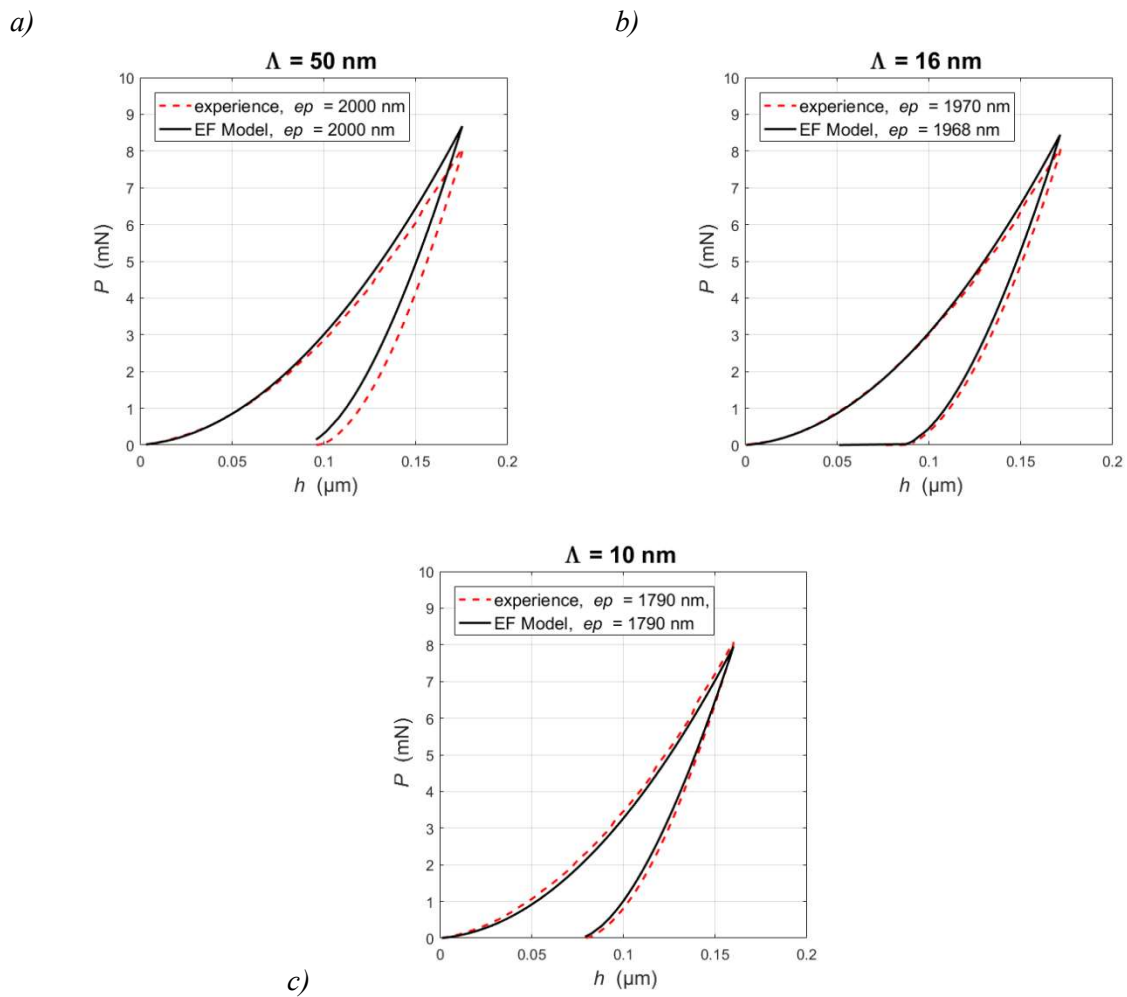


Figure 12 : Comparaison modèle-expérience pour les différentes périodes.  
Modèle avec couche de transition

Pour l'empilement de période 10 nm, une analyse des spectres obtenus par perte d'énergie des électrons au seuil critique de l'azote révèle qu'au centre de la couche métallique, de l'azote subsiste. L'épaisseur de la couche de transition de 2,12 nm obtenue par recalage du modèle EF est en très bon accord avec les résultats obtenus par spectroscopie de perte d'énergie des électrons.

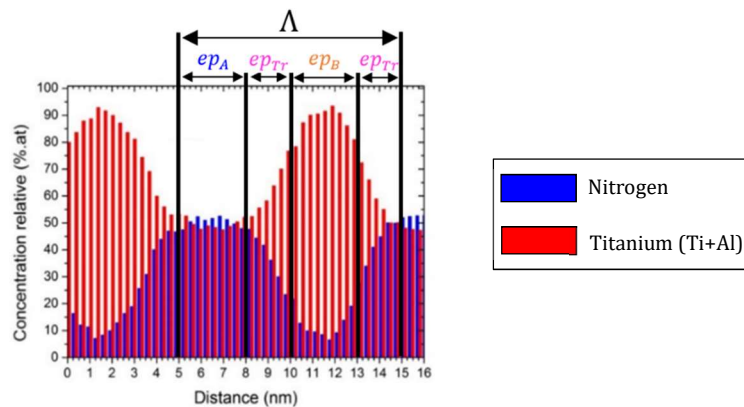


Figure 13 : Analyse par spectroscopie de perte d'énergie des électrons du revêtement de période  $\Lambda = 10 \text{ nm}$

### 4.3 Sensibilité de la force d'indentation

Afin de quantifier l'influence des différents paramètres sur la force d'indentation, une analyse de sensibilité locale de la force d'indentation aux différents paramètres du modèle pour la période 50 nm (avec une épaisseur de transition prise égale à 1 nm) est menée.

Une des méthodes les plus courantes est de définir une sensibilité scalaire à chaque paramètre  $\theta_j$ , à partir d'une norme 2. La fonction de sensibilité peut ainsi s'écrire sous la forme :

$$\delta_j = \frac{\theta_j}{P_{max}} \sqrt{\frac{1}{T} \sum_{k=1}^T \left( \frac{\partial P_k}{\partial \theta_j} \right)^2} \quad (7)$$

avec  $P_{max}$  la valeur maximale de la force d'indentation calculée. La dérivée est calculée par différences finies progressives avec une perturbation relative de  $10^{-3}$ . Ce calcul de sensibilité de la force d'appui est effectuée pour 14 paramètres :

$$\theta = \left( E_A, \nu_A, \sigma_{y,A}, H_{p,A}, E_B, \nu_B, \sigma_{y,B}, H_{p,B}, \frac{ep_A}{\Lambda}, \frac{ep_{Tr}}{\Lambda}, \frac{R}{\Lambda}, \mu, E_{ind}, \nu_{ind} \right) \quad (8)$$

Les 8 premiers sont les paramètres élastoplastiques des monocouches (A et B) suivie des fractions volumiques de céramique ( $ep_A/\Lambda$ ), d'interface ( $ep_{Tr}/\Lambda$ ) et du rayon de pointe dimensionnalisé ( $R/\Lambda$ ). Le coefficient de frottement ( $\mu$ ), le module de Young ( $E_{ind}$ ) et le coefficient de Poisson ( $\nu_{ind}$ ) de la pointe en diamant complète cette liste. Les résultats pour la période 50 nm sont récapitulés dans l'histogramme de la Figure 14.

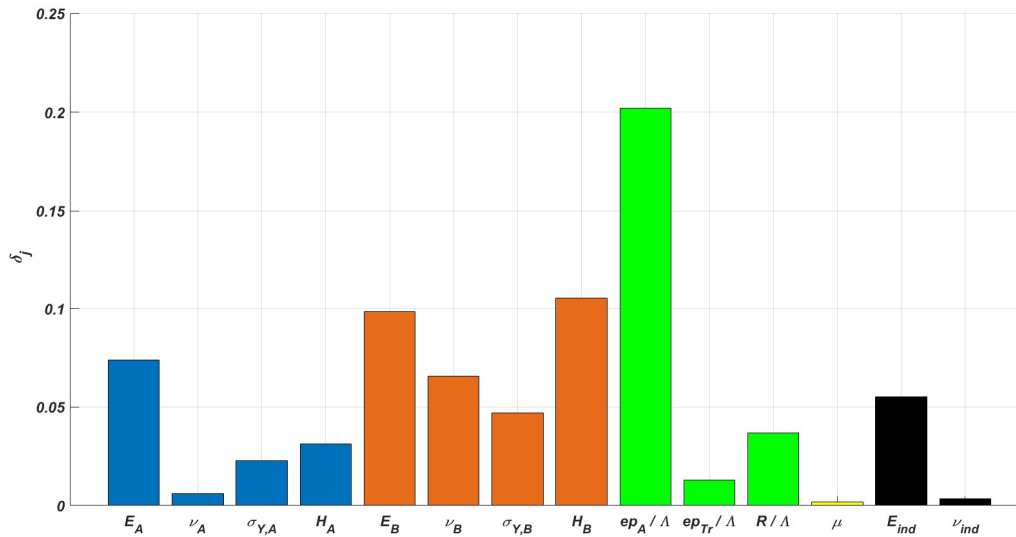


Figure 14 : Sensibilité de la force d'indentation aux différents paramètres pour  $\Lambda = 50$  nm

On peut noter le fort impact du rapport de la fraction volumique de céramique ( $ep_A/\Lambda$ ), des paramètres élastoplastiques de la couche métallique (B) et de l'élasticité de la pointe de l'indenteur. Pour cette période, l'épaisseur de la couche de transition joue un rôle mineur, ce qui est cohérent puisque le modèle sans transition permettait déjà de prévoir le comportement de ce revêtement (Figure 10a).

## 6 Conclusion

Les propriétés élastoplastiques d'un monocouche métallique  $Ti_{0,54}Al_{0,46}$  et d'un monocouche céramique  $Ti_{0,54}Al_{0,46}N$  ont été identifiées par nanoindentation Berkovich sur des échantillons monocouches. En nano-architecturant un revêtement multicouche de période  $\Lambda$  composé d'un empilement de ces deux monocouches avec une interface parfaite et sans épaisseur, la modélisation ne permet pas de reproduire les courbes d'indentation ni l'augmentation de la dureté observée expérimentalement aux faibles périodes. Une analyse de sensibilité de la force d'indentation a mis en évidence l'influence de la fraction volumique des couches et de l'écroutissage de la couche céramique. L'introduction d'une couche de transition au comportement élastoplastique moyen métal/céramique permet de reproduire correctement les courbes d'indentation. L'épaisseur de la couche de transition estimée par recalage du modèle EF de nanoindentation sur les données expérimentales est en accord avec les mesures de spectrométrie par perte d'énergie des électrons (au seuil de l'azote) disponibles pour la période 10 nm. Cet accord devra être confirmé pour les autres périodes.

## Remerciement

Ce travail a été réalisé dans le cadre du projet de recherche RESEM 2019, géré par l'Institut de Recherche Technologique en Matériaux, Métallurgie et Procédés (IRT M2P) et soutenue financièrement par le programme français Plan d'Investissement d'Avenir (PIA).

## Références

- [1] M.-J. Pac, S. Giljean, C. Rousselot, F. Richard, et P. Delobelle, « Microstructural and elasto-plastic material parameters identification by inverse finite elements method of  $Ti(1-x)Al_xN$  (0 », *Thin Solid Films*, vol. 569, p. 81-92, oct. 2014.
- [2] M.-J. Pac *et al.*, « Investigation of  $Ti_{0.54}Al_{0.46}/Ti_{0.54}Al_{0.46}N$  multilayer films deposited by reactive gas pulsing process by nano-indentation and electron energy-loss spectroscopy », *Thin Solid Films*, vol. 634, p. 96-106, juill. 2017.
- [3] M.-J. Pac, S. Giljean, Y. Pinot, C. Rousselot, P. Delobelle, « Dureté et module d'indentation de films minces de nitrures de titane et d'aluminium architecturés en multicouches nanométriques », Indentation 2016, Lille, France, 2016.
- [4] T. Leyendecker, O. Lemmer, S. Esser, et J. Ebberink, « The development of the PVD coating  $TiAlN$  as a commercial coating for cutting tools », *Surface and Coatings Technology*, vol. 48, n° 2, p. 175-178, nov. 1991.
- [5] J. Y. Rauch, C. Rousselot, et N. Martin, « Structure and composition of  $Ti_xAl_{1-x}N$  thin films sputter deposited using a composite metallic target », *Surface and Coatings Technology*, vol. 157, n° 2, p. 138-143, août 2002.
- [6] N. Martin *et al.*, « Procédé de pulvérisation réactive à signal de commande cyclique et dispositif correspondant », 2905124, févr-2008.
- [7] W. C. Oliver et G. M. Pharr, « An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments », *Journal of Materials Research*, vol. 7, n° 6, p. 1564-1583, juin 1992.
- [8] W. C. Oliver et G. M. Pharr, « Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology », *Journal of Materials Research*, vol. 19, n° 1, p. 3-20, janv. 2004.
- [9] M. F. Doerner et W. D. Nix, « A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments », *Journal of Materials Research*, vol. 1, n° 4, p. 601-609, août 1986.
- [10] A. C. Fischer-Cripps, « Nanoindentation Testing », in *Nanoindentation*, A. C. Fischer-Cripps, Éd. New York, NY: Springer New York, 2011, p. 21-37.

- 
- [11] A. K. Bhattacharya et W. D. Nix, « Analysis of elastic and plastic deformation associated with indentation testing of thin films on substrates », *International Journal of Solids and Structures*, vol. 24, n° 12, p. 1287-1298, janv. 1988.
- [12] J. Lemaitre et J.-L. Chaboche, *Mechanics of Solid Materials*. Cambridge University Press, 1994.
- [13] K. Levenberg, « A method for the solution of certain non-linear problems in least squares », *Quarterly of applied mathematics*, vol. 2, n° 2, p. 164–168, 1944.
- [14] D. Marquardt, « An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters », *Journal of the Society for Industrial and Applied Mathematics*, vol. 11, n° 2, p. 431-441, juin 1963.
- [15] F. Richard, MIC2M Software: Modélisation et Identification du Comportement Mécanique des Matériaux / Modeling and Identification of the Mechanical Behavior of Materials, 2000.  
<http://mic2m.univ-fcomte.fr>.